

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2003 年 10 月 2 日 (02.10.2003)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 03/081299 A1

- (51) 国際特許分類⁷: G02B 5/30, C08J 5/18, B29C 47/88 (NISHIMURA, Koichi) [JP/JP]; 〒100-8323 東京都千代田区丸の内二丁目6番1号日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP03/03506
- (22) 国際出願日: 2003 年 3 月 24 日 (24.03.2003) (74) 代理人: 前田 均, 外 (MAEDA, Hitoshi et al.); 〒101-0064 東京都千代田区猿楽町2丁目1番1号桐山ビル2階 前田・西出国際特許事務所 Tokyo (JP).
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): CN, JP, KR, US.
- (30) 優先権データ: 特願2002-83935 2002 年 3 月 25 日 (25.03.2002) JP (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本ゼオン株式会社 (ZEON CORPORATION) [JP/JP]; 〒100-8323 東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 Tokyo (JP). 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 西村 浩一
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: OPTICAL FILM AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME

(54) 発明の名称: 光学用フィルムおよびその製造方法

(57) Abstract: An optical film constituted of a thermoplastic resin film obtained through a melt extruder, characterized in that the thermoplastic resin film, when α represents an angle defined by the direction of extrusion of thermoplastic resin film through the melt extruder and the lag axis at each point and Re represents the magnitude of retardation at each point, satisfies, over the entire surface of the film, the relationship of the formula: $[\sin^2 2\alpha] \times [\sin^2(\pi \text{Re}/550)] \leq 4.0 \times 10^{-5}$. This optical film is free from the problem of residual solvent, ensures a low degree of optical strain and, when used as a protective film for polarizer, is free from the problems of color irregularity and color omission on obtained liquid crystal display.

(57) 要約: 溶融押出機を用いて得られた熱可塑性樹脂フィルムで構成してある光学用フィルムであって、前記熱可塑性樹脂フィルムが、該熱可塑性樹脂フィルムの前記溶融押出機からの押出方向と各点における遅相軸とのなす角度を α とし、各点におけるレターデーションの大きさをReとしたときに、フィルム全面に亘って、下記式の関係を満足するものであることを特徴とする光学用フィルムが提供される。 $[\sin^2 2\alpha] \times [\sin^2(\pi \cdot \text{Re} / 550)] \leq 4.0 \times 10^{-5}$ 。本発明によると、残留溶剤の問題がなく、光学的歪みが小さく、偏光子の保護フィルムとして用いた場合に得られる液晶ディスプレイの色ムラや色ヌケの問題がない光学用フィルムが提供される。

WO 03/081299 A1

明細書

光学用フィルムおよびその製造方法

発明の属する技術分野

本発明は、フラットパネルディスプレイ等に用いられる各種フィルム及びその原料フィルムとして好適な光学用フィルムと、該光学用フィルムの製造方法と、該光学用フィルムで構成される偏光子の保護フィルムと、該保護フィルムを有する偏光フィルムと、該光学用フィルムを延伸加工して得られる位相差フィルムとに、関する。

背景技術

液晶ディスプレイなどのフラットパネルディスプレイには、熱可塑性樹脂フィルムを含んで構成された、位相板、偏光板、液晶セル基板等が使用されている。位相板としては、ポリカーボネートなどの原料フィルムを延伸して、一定のレターデーションの大きさ（位相差ともいう）を持たせ、それらを2枚以上貼り合せたものが主として用いられている。

偏光板としては、ポリビニルアルコールからなる偏光子の上下面に保護フィルムを積層させたものが主として用いられている。偏光子の保護フィルムとしては、トリアセチルセルロースの溶液流延法によるフィルムが主として用いられている。液晶セル基板用フィルムとしては、ポリエチレンテレフタレート（PET）製のフィルムが主として用いられている。

最近の、フラットパネルディスプレイの大型化、薄型化、高精細化や高コントラスト化に伴い、上述した各種熱可塑性樹脂フィルムには、従来以上に高度に光学的歪みが小さいことが要求されるようになってきている。光学的歪みが大きいと、フラットパネルディスプレイ全体の色ムラや色ヌケなどの光学欠陥の原因となるからである。

従来から、各種熱可塑性樹脂フィルムの光学的歪みを示す指標として、主にレターデーションの大きさが採用されてきている。このレターデーションの大きさ

の値を、小さく又は所定の値で、かつ面内で均一にすることにより、光学的歪みを小さくしようとする試みがなされてきた。例えば、偏光子の保護フィルムでは、フィルム全面に亘って、レターデーションの大きさが小さく、かつ一定であることが指標とされてきた。

熱可塑性樹脂製の光学用フィルムであって、該フィルム全面に亘って、レターデーションの大きさが小さく、かつ一定であるフィルムが提案されている。

偏光子の保護フィルムとしては、従来、トリアセチルセルロース (TAC) の溶液流延法によるフィルムが主に用いられてきた。TACの溶液流延法フィルムは、レターデーションの大きさが比較的小さく、フィルム面内で比較的一定であるが、生産性に劣る、溶液流延後の乾燥時に完全には溶剤を除去することが不可能であり、フィルム内残留する溶剤に起因して、揮散する溶剤がフラットパネルディスプレイの電子回路や他の部品に悪影響を与え誤動作や表示欠陥を起こす等の問題があった。

そこで、最近では、保護フィルムとして、TACの溶液流延法によるフィルムに代え、熱可塑性樹脂の溶融押出法によるフィルムが検討されている。例えば、特開 2000-273204 号公報には、特定の熱可塑性樹脂を特定の条件で溶融押出成形することにより、シート厚み $150 \sim 1000 \mu\text{m}$ 、シートの面内厚み公差 (Rmax) $15 \mu\text{m}$ 、シート表面の粗さ $0.06 \mu\text{m}$ 、シートの表面レターデーションの大きさ (最大値) が 15 nm であり、レターデーションの大きさが比較的一定で、かつ比較的小さいシートが得られる技術が開示されている。

しかし、この公報に開示されている技術は、シート厚み $150 \mu\text{m}$ 以上の厚いシートについての技術であり、一般にシート厚みが薄くなるに従って、厚みのバラツキが厚みに比べて大きくなりやすく、光学的歪みが酷くなる。このため、最近のフラットディスプレイの薄型化の要求に対応できないという問題があった。

また、この公報に開示されている技術では、面内のレターデーションの大きさの最大値が 15 nm もあり、それに起因して光学的歪みが大きくなり、益々、高性能化するフラットパネルディスプレイの要求性能には、対応できないという問題があった。

発明の開示

本発明の目的は、残留溶剤の問題がなく、光学的歪みが小さく、偏光子の保護フィルムとして用いた場合に得られる液晶ディスプレイの色ムラや色ヌケの問題がない光学用フィルムおよびその製造方法と、該光学用フィルムで構成される偏光子の保護フィルムと、該保護フィルムを有する偏光フィルムと、該光学用フィルムを延伸加工して得られる光学的歪みの小さい位相差フィルムとを、提供することである。

本発明者らは、前記課題を解決すべく鋭意検討した結果、溶融押出条件及び冷却ドラムの運転条件を最適化することにより、得られる光学用フィルムのレターデーションの大きさ (R_e) の最大値を 10 nm 以下とすることができる技術を見だし、別途発明として完成した。

R_e の最大値が 0 nm となれば面内の光学的歪みが全く無いこととなる。しかし、そのような技術をもってしても、 R_e の最大値を一定レベル以下にすることは困難であり、限界がある。そこで、本発明者らは、 R_e の値だけではなく、方向性を示す遅相軸の向きに注目した。各点において、複屈折が最大となる向きを遅相軸、最小となる向きを進相軸という。

本発明者らは、 R_e だけを採り上げて小さくするよりも、 R_e を遅相軸と熱可塑性樹脂の押出方向との成す角 α との関係で制御することが重要であること、その指標として、 $Z = [\sin^2 2\alpha] \times [\sin^2 (\pi \cdot R_e / 550)]$ で表される Z 値が適していること、及びこの Z 値は小さい方が良いが、 6.0×10^{-3} を境にして、得られる液晶ディスプレイの色ムラと色ヌケが大幅に変化し、この値以下であれば最近の液晶ディスプレイの高度な要求に対応できることを見いだした。本発明は、これらの知見に基づいて完成するに至ったものである。

すなわち、本発明によれば、

溶融押出機を用いて得られた熱可塑性樹脂フィルムで構成してある光学用フィルムであって、

前記熱可塑性樹脂フィルムが、該熱可塑性樹脂フィルムの前記溶融押出機からの押出方向と各点における遅相軸とのなす角度を α とし、各点におけるレターデーションの大きさを R_e としたときに、フィルム全面に亘って、下記式の間係を

満足するものであることを特徴とする光学用フィルムが提供される。

$$[\sin^2 2\alpha] \times [\sin^2 (\pi \cdot Re / 550)] \leq 4.0 \times 10^{-5}.$$

好ましくは、前記 Re の値が 10 nm 以下である。

好ましくは、前記熱可塑性樹脂が脂環式構造含有重合体である。

本発明に係る光学用フィルムは、たとえば以下に示す製造方法により製造されることが好ましい。

すなわち、本発明の一例によれば、

押出機から押出された熔融状態の熱可塑性樹脂を、第1冷却ドラム、第2冷却ドラム及び第3冷却ドラムに、順に、外接させて冷却する工程を有する、熱可塑性樹脂フィルムで構成してある光学用フィルムの製造方法であって、

前記第3冷却ドラムの周速度を R_3 (m/分) とし、前記第2冷却ドラムの周速度を R_2 (m/分) としたときの、該 R_3 と R_2 との比 (R_3 / R_2) を 0.990 以上 0.999 未満として、前記熱可塑性樹脂を冷却する、光学用フィルムの製造方法が提供される。

この製造方法では、前記第1冷却ドラムでの樹脂接触時間を t_1 (秒) とし、前記熱可塑性樹脂の前記第1冷却ドラムを離れるときの温度を T_{p1} (°C) とし、前記熱可塑性樹脂のガラス転移温度を T_g (°C) としたときの、 $t_1 \times (T_{p1} - T_g)$ (単位: 秒・deg) を、 -50 以上 20 以下として、前記熱可塑性樹脂を冷却することが好ましい。

この製造方法では、前記第1冷却ドラムの周速度を R_1 (m/分) としたときの、前記 R_2 と該 R_1 との比 (R_2 / R_1) を 0.990 以上 1.01 未満として、前記熱可塑性樹脂を冷却することが好ましい。

この製造方法では、前記熱可塑性樹脂の前記第3冷却ドラムを離れるときの温度を T_{p3} (°C) としたときの、該 T_{p3} を前記 T_g よりも $50 \sim 100^\circ\text{C}$ 低い温度にして、前記熱可塑性樹脂を冷却することが好ましい。

この製造方法では、前記熱可塑性樹脂の前記第2冷却ドラムを離れるときの温度を T_{p2} (°C) としたときに、該 T_{p2} を前記 T_g よりも $0 \sim 60^\circ\text{C}$ 低い温度にして、前記熱可塑性樹脂を冷却することが好ましい。

この製造方法では、前記第1冷却ドラムと前記第2冷却ドラムの温度差を 20

℃以下として、前記熱可塑性樹脂を冷却することが好ましい。

本発明によれば、上記いずれかの光学用フィルムで構成される偏光子の保護フィルムが提供される。

本発明によれば、偏光子と、該偏光子の片面または両面に接着層を介して積層された上記保護フィルムとを、有する偏光フィルムが提供される。

本発明によれば、上記いずれかの光学用フィルムを延伸加工して得られる位相差フィルムが提供される。

発明を実施するための最良の形態

本発明に係る光学用フィルムは、熱可塑性樹脂フィルムで構成される。

本発明で用いる熱可塑性樹脂フィルムは、少なくとも熱可塑性樹脂を含む。

熱可塑性樹脂としては、光学用フィルムの製造に通常用いられている樹脂であれば、特に限定されない。たとえば、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-プロピレン共重合体、ポリスチレン、ポリアクリロニトリル、アクリロニトリル-スチレン共重合体、ポリ塩化ビニル、ポリメチルメタクリレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリカーボネートや脂環式構造含有重合体などが挙げられる。中でも、透明性が高く、フィルム強度に優れることから、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレートや脂環式構造含有重合体が好ましく、更に位相差を小さくしやすいことから脂環式構造含有重合体が特に好ましい。

脂環式構造含有重合体とは、繰り返し単位内に、炭素-炭素飽和結合からなる環構造（本発明では「脂環式構造」という。）を有する重合体のことであり、たとえば特開 2002-321302 号公報などに開示されている公知の重合体を使用できる。たとえば、ノルボルネン環構造を有するモノマー（以下、「ノルボルネン類」という。）の開環重合体及びその水素添加物、ノルボルネン類の付加重合体及びその水素添加物、ノルボルネン類とビニル化合物との付加共重合体及びその水素添加物；ポリスチレンなどの芳香族ビニル炭化水素化合物の重合体の芳香環を水素添加した重合体、脂環式構造とビニル基とを有するモノマーの付加重合体、炭素-炭素からなる環構造の中に一つ以上の不飽和結合を有するモノマ

一の付加重合体及びその水素添加物などが挙げられる。

本発明で用いる熱可塑性樹脂フィルムには、上述した熱可塑性樹脂の他に、必要に応じて、各種配合剤が配合されていてもよい。配合剤としては、特に限定されない。たとえば、酸化防止剤、熱安定剤、光安定剤、耐候安定剤、紫外線吸収剤、近赤外線吸収剤等の安定剤；滑剤、可塑剤等の樹脂改質剤；染料や顔料等の着色剤；帯電防止剤等が挙げられる。これらの配合剤は、単独で、あるいは2種以上を組み合わせる用いることができる。配合剤の配合量は、本発明の目的を損なわない範囲で適宜選択される。

酸化防止剤としては、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、イオウ系酸化防止剤などが挙げられる。中でも、フェノール系酸化防止剤が好ましく、アルキル置換フェノール系酸化防止剤が特に好ましい。酸化防止剤を含めることで、後述する溶融押出成形後の熱可塑性樹脂フィルムの透明性や低吸水性等を低下させることなく、成形時の酸化劣化等による成形物（熱可塑性樹脂フィルム）の着色や強度の低下を防止できる。酸化防止剤は、それぞれ単独で、あるいは2種以上を組み合わせる用いることができる。酸化防止剤の配合量は、本発明の目的を損なわれない範囲で適宜選択される。通常は、熱可塑性樹脂100重量部に対して0.001～5重量部程度であり、好ましくは0.01～1重量部である。

本発明で用いる熱可塑性樹脂フィルムは、少なくとも熱可塑性樹脂を含む成形用材料を溶融押出成形して製造される。具体的には、まず、たとえば熱可塑性樹脂と各種配合剤とを混合して成形用材料とする。次に、この成形用材料を溶融押出成形に適した原料ペレットに加工する。次に、この原料ペレットを溶融押出機に供給し、溶融押出法によりフィルム状に加工して、熱可塑性樹脂フィルムとする。溶融押出法は、原料ペレットをシリンダー中で加熱溶融し、スクリーンで加圧して、Tダイ等のダイスから、たとえばフィルム状に押し出す方法である。通常は、ダイスから押し出された溶融状態の熱可塑性樹脂を複数の冷却ドラムに順に外接させて移送し、その間に冷却し、その後に必要な工程を経て、熱可塑性樹脂フィルムとされる。冷却ドラムを通った後の熱可塑性樹脂フィルムの幅は、ダイスから押し出された直後の溶融状態の熱可塑性樹脂の幅（ダイスのリップの幅に同じ）と比較して、ネックインにより、2～10%程度狭くなる。そして、熱

可塑性樹脂フィルムの幅方向の端（以下、単に「端」ともいう。）は、そのフィルムの他の部分に比べて、厚みが厚くなり、光学的歪みも大きくなる。

本発明では、冷却後の熱可塑性樹脂フィルムを光学用途に用いるため、通常は、巻き取りドラムで巻き取る前に、端の適当な部分を切り取っておく。この切り取ってしまう部分を、本発明では「ミミ」と言う。このように冷却後の無延伸の熱可塑性樹脂フィルムのうち、ミミとなる部分を取り除いた部分を、本発明では「光学用フィルム」という。保護フィルムや液晶基板などのように、レターデーションの大きさがゼロに近い状態で用いる場合には、無延伸の熱可塑性樹脂フィルムからミミを取って、光学用フィルムを取り出し、これを巻き取りドラムで巻き取る。

本発明で用いる熱可塑性樹脂フィルムは、巻き取りドラムでロール状に巻き取られて光学用フィルムとされた後、次工程である、延伸工程や他のフィルム等との貼り合わせ工程に供されて、付加価値が付与される。

本発明で用いる熱可塑性樹脂フィルムの平均厚みは、特に限定されない。本発明で用いる熱可塑性樹脂フィルムから取り出される光学用フィルムを薄型のフラットパネルディスプレイ用などに適したものとするには、熱可塑性樹脂フィルムの平均厚みを、通常 $100\ \mu\text{m}$ 以下、好ましくは $80\ \mu\text{m}$ 以下、特に好ましくは $60\ \mu\text{m}$ 以下とすることが望ましい。熱可塑性樹脂フィルムの平均厚みは、熔融押出機に投入する原料ペレットの投入速度、冷却ドラムの回転速度及びこれらの両方を変化させること等により、任意に設定することができる。

本発明で用いる熱可塑性樹脂フィルムは、熔融押出機からの押出方向と各点における遅相軸とのなす角度を α とし、各点におけるレターデーションの大きさを R_e としたときに、フィルム全面に亘って、下記式の関係を満たすものである。

$$[\sin^2 2\alpha] \times [\sin^2 (\pi \cdot R_e / 550)] \leq 4.0 \times 10^{-5}.$$

本発明では、上記式の左辺（ $[\sin^2 2\alpha] \times [\sin^2 (\pi \cdot R_e / 550)]$ ）を、Z値という。このZ値は、光学用フィルムのレターデーションに起因する光の漏れに対応する量である。直線偏光は、その光軸に直行する吸収軸を有する偏光子を透過することはできない。しかし、その直線偏光が、光学的歪みのある（レターデーションがゼロでない）光学用フィルムを透過すると、光学用

フィルムの遅相軸の方向に位相が遅れ、前記偏光子を直線偏光の一部が透過できるようになる。前記偏光子を直線偏光の一部が透過すると、該光学用フィルムを用いた液晶ディスプレイの色ムラや色ヌケの原因となる。

上記式では、直線偏光の波長として可視光の中心波長である 550 nm についての値としているが、 α は、通常、フィルムの遅相軸と直線偏光の光軸との成す角として定義される。ところが、光学用フィルム単体の性能を試験しようとするとき α の定義のしようがない。そこで、本発明者らは、光学用フィルムの元となる熱可塑性樹脂フィルムの溶融押出機からの押出方向と、各点における遅相軸とのなす角に注目し、これを α として Z 値を定義し、代用特性とした。

近年、液晶ディスプレイが大型化するに従い、ロール状等の長尺の光学用フィルム同士またはそのような光学用フィルムと他の長尺のフィルムを貼り合わせて積層体とすることが多くなったため、積層体の長手方向（溶融押出機からの押出方向に合致する）との関係で α を定義することにより、光学用フィルム単体の品質管理に有用と考えた。

上述した各点における R_e および α の値は、位相差計などを用いて測定することができ、 Z 値はこれらの値から求めることができる。

Z 値の最大値は、適当な長さに亘って測定し、更に幅方向に対しては光学用フィルムの端に近い部分を含む数点以上を測定することにより、得ることができる値を代用値として採用することができる。 Z 値の最大値は、通常 4.0×10^{-5} であることが必要であり、好ましくは 3.8×10^{-5} 、さらに好ましくは 3.4×10^{-5} である。 Z 値が所定値以下であるときに、得られる液晶ディスプレイの色ムラや色ヌケの問題が一層少なくなり、目視では色ムラや色ヌケが感じられなくなり、表示品質が格段に向上するので、好ましい。

本発明では、 R_e の最大値については、特に限定されない。しかし、フィルム全面に亘って、 R_e が、好ましくは 10 nm 以下、より好ましくは 7 nm 以下、さらに好ましくは 5 nm 以下である。 R_e の値が所定値以下であるときに、得られる液晶ディスプレイの色ムラや色ヌケの問題が一層少なくなる。また、耐久試験後の色ムラや色ヌケも一層少なくなるので、好ましい。

R_e の値は、エリプソメータ等の光学的手法により測定が可能である。 R_e の

最大値は、適当な長さに亘って測定し、更に幅方向に対しては光学用フィルムの端に近い部分を含む数点以上を測定することにより、得ることができる値を代用値として採用することができる。

以上のような条件を満たす本発明に係る光学用フィルムを製造する方法は、特に限定されない。例えば、フィルム全面に亘って上記の条件を満たす様に、フィルム全体に占めるミミの部分の割合を従来の場合よりも多くする方法が挙げられる。この場合の、ミミの部分の割合は、通常、左右各3%以上、好ましくは左右各5%以上、特に好ましくは左右各7%以上であり、好ましくは左右各40%以下、特に好ましくは左右各20%以下である。他に、熱可塑性樹脂フィルムの熔融押出から巻き取りまでの条件を適正化することによっても、本発明の光学用フィルムを製造することが可能である。

以下に、本発明に係る光学用フィルムの好ましい製造方法の一例を説明する。

本発明に係る光学用フィルムの製造方法は、押出機から押出された熔融状態の熱可塑性樹脂を、第1冷却ドラム、第2冷却ドラム及び第3冷却ドラムに、順に、外接させて冷却する工程を有する。なお、その後、より好ましくは、前記冷却後の熱可塑性樹脂の幅方向両端部分を切り取る工程と、該切り取り後の熱可塑性樹脂をロール状に巻き取る工程とを、有する。

ここで、前記冷却工程において、好ましくは下記(1)～(6)の少なくともいずれか、より好ましくは少なくとも下記(1)および(2)、特に好ましくは下記(1)～(6)の総てを満足するように、前記熱可塑性樹脂を冷却する。

(1) 前記第3冷却ドラムの周速度を R_3 (m/分)とし、前記第2冷却ドラムの周速度を R_2 (m/分)としたときの、該 R_3 と R_2 との比(R_3/R_2)を、好ましくは0.990以上0.999未満、より好ましくは0.995以上0.998未満として、前記熱可塑性樹脂を冷却する。 R_3/R_2 の値が過度に大きいと、押出機から押し出された熔融状態の熱可塑性樹脂(以下、「シート状熱可塑性樹脂」ともいう。)に延伸がかかってレターデーシヨンの大きさやそのバラツキが大きくなり好ましくない。一方、 R_3/R_2 の値が過度に小さい場合も、シート状熱可塑性樹脂が弛んで垂れ、その重さが張力となってシート状熱可塑性樹脂に延伸がかかりレターデーシヨンの大きさやそのバラツキが大きくなり、

やはり好ましくない。 R_3/R_2 の設定値を決定するには、シート状熱可塑性樹脂を第2冷却ドラムから第3冷却ドラムへと移送するときに、第2冷却ドラム温度近辺から第3冷却ドラム温度近辺に低下することによる樹脂の収縮率に見合うように、樹脂温度を設定すればよい。上記の周速比を採ることにより、シート状熱可塑性樹脂が弛むことなく、適当なテンションで引っ張られながら、レターデーションの大きさが小さくて均一な熱可塑性樹脂フィルムを製造することができる。

(2) 前記第1冷却ドラムでの樹脂接触時間を t_1 (秒) とし、前記熱可塑性樹脂の前記第1冷却ドラムを離れるときの温度を T_{p1} (°C) とし、前記熱可塑性樹脂のガラス転移温度を T_g (°C) としたときの、 $t_1 \times (T_{p1} - T_g)$

(単位: 秒・deg) を、好ましくは-50以上20以下、より好ましくは-40以上で+15以下として、前記熱可塑性樹脂を冷却する。 $t_1 \times (T_{p1} - T_g)$ の値が、この範囲にある場合に、得られる光学用フィルムの厚みの均一性 D_r/D_v が小さくなり、 R_e の最大値が小さくなるため、本発明の光学用フィルムを得やすくなる。

(3) 前記第1冷却ドラムの周速度を R_1 (m/分) としたときの、前記 R_2 と該 R_1 との比 (R_2/R_1) を、好ましくは0.990以上1.01未満、より好ましくは0.995以上1.000未満として、前記熱可塑性樹脂を冷却することが望ましい。 R_2/R_1 の値がこの範囲にある場合に、得られる光学用フィルムのレターデーションの大きさムラが特に小さくなり、巻きジワが発生しにくくなる。

(4) 前記熱可塑性樹脂の前記第3冷却ドラムを離れるときの温度を T_{p3} (°C) としたときの、該 T_{p3} を前記 T_g よりも、好ましくは50~100°C、より好ましくは60~80°C低い温度にして、前記熱可塑性樹脂を冷却する。 T_{p3} の値がこの範囲にあるときに、得られる光学用フィルムのレターデーションの大きさムラが特に小さくなり、巻きジワが発生しにくくなる。温度 T_{p3} を上記範囲とするためには、第3冷却ドラム及び第2冷却ドラムの温度を制御すればよい。

(5) 前記熱可塑性樹脂の前記第2冷却ドラムを離れるときの温度を T_{p2}

(°C) としたときに、該 T_{p2} を前記 T_g よりも、好ましくは $0 \sim 60^\circ\text{C}$ 、より好ましくは $20 \sim 40^\circ\text{C}$ 低い温度にして、前記熱可塑性樹脂を冷却する。 T_{p2} の値がこの範囲にある場合に、得られる光学用フィルムのレターデーシヨンの大きさムラが特に小さくなり、巻きジワが発生しにくくなる。

(6) 前記第1冷却ドラムと前記第2冷却ドラムの温度差を、好ましくは 20°C 以下、より好ましくは 10°C 以下として、前記熱可塑性樹脂を冷却する。両者の温度差を 20°C 以下に保持して冷却を行うことで、レターデーシヨンの最大値を低くでき、表示ムラを低減することができる。

本発明に係る光学用フィルムは、液晶ディスプレイの偏光子の保護フィルムとして適している。偏光子は、ポリビニルアルコールや部分ホリマール化ポリビニルアルコールなどのビニルアルコール系ポリマーからなるフィルムに、ヨウ素などをドーブした後延伸加工することにより得られる。

偏光子を保護する目的で、該偏光子の片面または両面に、本発明の光学用フィルムを保護フィルムとして適当な接着層を介して積層し、偏光フィルムとすることができる。接着層としては、アクリル系重合体、シリコーン系ポリマー、ポリエステル、ポリウレタン、ポリエーテルや合成ゴムなどの適当なポリマーをベースポリマーとする粘着剤などが用いられる。

本発明の光学用フィルムは、保護フィルムとして、長尺の偏光子の長手方向と、長手方向を合わせて（ロール・トゥ・ロールという。）で貼り合わせて積層して偏光フィルムを製造する場合の材料に適している。

本発明の光学用フィルムを更に延伸加工して、位相差フィルムとすることができる。位相差フィルムは、延伸加工することにより、所定の値で、位相差フィルム全面に亘って均一なレターデーシヨンの大きさを有するフィルムである。位相差フィルムには、使用しようとする光の波長 λ の $\lambda/2$ 、 $\lambda/4$ などの位相差フィルムがある。本発明の光学用フィルムを延伸加工するには、例えばテンターを用いる。延伸時のフィルムの温度は、例えば $(T_g - 100)^\circ\text{C}$ 以上で $(T_g + 40)^\circ\text{C}$ 以下である。ここで T_g は、原料となる熱可塑性樹脂のガラス転移温度である。また、延伸倍率は、得ようとするレターデーシヨンの値と、位相差フィルムの厚みにもよるが、通常は、長さ（熱可塑性樹脂フィルムの押出方向）方向

に 1.05 倍以上 3.0 倍以下、幅方向には 0.2 倍以下であり長さ方向の一軸延伸の場合もある。

実施例

以下に、実施例及び比較例を挙げて、本発明についてより具体的に説明する。これらの例中の「部」及び「%」は、特に断わりのない限り質量基準である。

各種の試料作成及び試験は、下記に従って行った。

(1) フィルムの平均厚み D_{av}

接触式膜厚計を用い、フィルムの長さ方向は 500 mm 毎に 10 m に亘って (20 箇所)、幅方向には等間隔に 5 箇所について、フィルムの厚みを測定して求めた (単位: μm)。

(2) α 、 R_e 及び Z 値並びに R_e 及び Z 値の最大値

位相差測定装置〔王子計測機器製: KOBRA-21ADH〕を用い、フィルムの長さ方向は 500 mm 毎に 10 m に亘って (20 箇所)、幅方向には等間隔に 5 箇所について、 α 、 R_e (単位: nm) 及びそれらの結果から Z 値を計算し、これらの値の中から R_e 及び Z 値の最大値を求めた。測定波長は 550 nm、入射角は 0° とした。

(3) 全光線透過率

本実験で得られる光学フィルムをフラットパネルディスプレイで使用する際の色ムラの簡易試験として、JIS-K7105 に準拠した直行ニコル法により光学式フィルムの全光線透過率を測定し、その平均値を求めた (単位: %)。この値は、理想的には 0 であるが、0.03 % 以下なら良好、0.04 % 以上では不良である。

(4) 色ムラ

偏光子の保護フィルムとして用いる際に問題となる色ムラ、色抜けを簡易的に試験した。市販の液晶ディスプレイの構成では、通常は偏光子の両面を 2 枚の保護フィルムで挟んで偏光板とし、さらに液晶の両面を (必要なその他の層を介して) 2 枚の偏光板で挟んだ構造となっている。保護フィルムに光学的歪みがあると、液晶ディスプレイ全体の色ムラ、色ヌケの原因となる。それぞれの保護フィ

フィルムとなる光学用フィルムの光学的歪みを簡易的に以下のように試験することとした。液晶ポリビニルアルコールにヨウ素がドーブされた市販の偏光子を2枚用意し、二枚の偏光子をお互いの偏光軸が直行するように合わせて、その間に実験で得られた光学用フィルムを挟んで、偏光子／光学用フィルム／偏光子からなる3層構造として非偏光（自然光）の透過の度合いを、目視観察した。本発明では長さ方向（熱可塑性樹脂フィルムの溶融押出機からの押出方向）との成す角を α と定義し、代用特性とした。このため、他の方向についても確認するため、各測定点において、偏光子を回転させて、フィルム面内の各方向について光のモレを確認した。光のモレが全く認められないものを◎、ほとんど認められないものを○、わずかに認められるものを△、明らかに認められるものを×とした。本発明では測定点は、フィルムの長さ方向は500mm毎に10mmに亘って、幅方向には等間隔に10か所について行った。

（５）簡易液晶ディスプレイ試験

偏光子の保護フィルムとして用いる際に問題となる色ムラ、色抜けを、実際の液晶ディスプレイを用いて簡易的に試験した。市販の携帯電話端末の表示部（白黒2階調表示、反射型、表示面積30mm×30mm）から、液晶セルから注意深く偏光フィルムを剥がし、その代わりに、上記偏光子の両面に本発明の光学用フィルムを保護フィルムとして用いて作成した偏光フィルムを積層し、試験用の液晶ディスプレイを作製した。光学用フィルムの幅方向の端に近い部分を試料片として使用し、積層にあたってはポリビニルアルコールの10質量%の水溶液を用いた。各実験例ごとに上記の試験用の液晶ディスプレイを作成し、各種の文字や静止画像を表示させ、視野角0°と30°とで観察して、色ムラ、色ヌケ（本来表示されるべき色からずれる箇所）の有無を目視で観察し、良好で合格レベルのものを○、不良のものを×、その中間で合格レベルにないものを△とした。

（６）耐久試験後の色ムラ

得られた光学用フィルムから1000mm×1000mmの試験片を切り出し、80℃、90%RHで100時間の高温高湿耐久性促進試験にかけた。その後に、取り出した試験片について、（４）と同様の色ムラ試験を行った。

実施例 1

窒素雰囲気下、脱水したシクロヘキサン 500 部に、1-ヘキセン 0.82 部、ジブチルエーテル 0.15 部、トリイソブチルアルミニウム 0.3 部を室温で反応器に入れ混合した後、45℃に保ちながら、トリシクロ[4.3.0.1^{2,5}]デカー-3,7-ジエン（ジシクロペンタジエン、DCP）70 部、テトラシクロ[4.4.0.1^{2,5}.1^{7,10}]ドデカー-3-エン（テトラシクロドデセン、TCD）70 部、および 8-エチリデン-テトラシクロ[4.4.0.1^{2,5}.1^{7,10}]ドデカー-3-エン（エチリデンテトラシクロドデセン、ETD）60 部からなるモノマー混合物と、六塩化タングステン（0.7%トルエン溶液）40 部とを、2 時間かけて連続的に添加して重合を行った。その後、重合溶液中に、ブチルグリシジルエーテル 1.06 部とイソプロピルアルコール 0.52 部とを加えて、重合触媒を不活性化し、重合反応を停止させた。

次に、得られた快感重合体を含有する重合反応溶液 100 部に対して、シクロヘキサン 270 部を加え、さらに水素化触媒として、ニッケル-アルミナ触媒（日揮化学社製）5 部を加え、水素により 5 MPa に加圧して、攪拌しながら温度 200℃まで加温した後、4 時間反応させ、DCP/TCD/ETD 開環重合体水素化ポリマーを 20%含有する反応溶液を得た。

次に、ろ過により、この溶液から水素化触媒を除去した後、軟質重合体（クレ社製、セプトン 2002）、および酸化防止剤（チバスペシャリティ・ケミカルズ社製、イルガノックス 1010）を、いずれも重合体 100 部当たり、0.1 部、得られた溶液に添加して溶解させた。

次に、溶液からシクロヘキサンおよびその他の揮発成分を、円筒型濃縮乾燥器（日立製作所社製）を用いて除去しつつ、水素化ポリマーを熔融状態で押出機からストランド状に押し出し、冷却後、ペレット化して開環重合体水素添加物を得た。この水素添加物は、ガラス転移温度 T_g が 140℃であった。

得られたペレットをシリンダー内径が 50 mm、スクリューの L/D 値が 28 の単軸押出成形機（日本製鋼所製）でバレル温度 260℃で熔融押出し、ダイ温度 260℃のコートハンガーダイから幅 650 mm のシート状熔融樹脂を押し出し、第 1 冷却ドラム（直径 200 mm、温度 T_1 : 135℃、周速度 R_1 : 14.

50 m/分) に密着させ、直ちにナイフコーターにより第1冷却ドラムを、次いで第2冷却ドラム(直径350 mm、温度 T_2 : 125℃、周速度 R_2 : 14.46 m/分)、次いで第3冷却ドラム(直径350 mm、温度 T_3 : 80℃、周速度 R_3 : 14.40 m/分)に、順次、密着させて移送し、逐次、冷却ならびに冷却ドラム面転写による表裏面の平滑化を行い、幅550 mm(ネックインは左右各50 mm)の熱可塑性樹脂フィルムを得た。この熱可塑性樹脂フィルムは、調整ドラムを経た後、カッターにより両方の端から各30 mmをミミとして取り除き、巻き取りドラムによりロール状に巻き取り、ロール状の光学用フィルムを得た。

なお、第1冷却ドラムでのシート状熱可塑性樹脂の接触時間 t_1 は3.1(秒)、第1冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p1} は132(℃)、第2冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p2} は119(℃)、第3冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p3} は79(℃)であった。 $(R_3/R_2) = 0.996$ 、 $(R_2/R_1) = 0.997$ 、 $(t_1 \times (T_{p1} - T_g)) = -25$ (単位: 秒・deg)であった。

得られた光学用フィルムについて、上記の各試験項目を行った結果を表1に記す。

実施例 2

実施例1において、 T_1 を130℃に変更した他は実施例1と同様に行って光学用フィルムを製造した。この際、第1冷却ドラムでのシート状熱可塑性樹脂の接触時間 t_1 は3.1(秒)、第1冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p1} は128(℃)、第2冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p2} は121(℃)、第3冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p3} は81(℃)、 $t_1 \times (T_{p1} - T_g)$ は-37(単位: 秒・deg)であった。得られた光学用フィルムの試験結果を表1に記す。

実施例 3

実施例1において、 T_1 を130℃、 T_2 を120℃に変更した他は実施例1と同様に行って光学用フィルムを製造した。この際、第1冷却ドラムでのシート状熱可塑性樹脂の接触時間 t_1 は3.1(秒)、第1冷却ドラムを離れるときの

樹脂温度 T_{p1} は 128 ($^{\circ}\text{C}$)、第2冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p2} は 114 ($^{\circ}\text{C}$)、第3冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p3} は 77 ($^{\circ}\text{C}$)、 $t_1 \times (T_{p1} - T_g)$ は -37 (単位: 秒・deg) であった。得られた光学用フィルムの試験結果を表1に記す。

実施例 4

実施例1において、 T_1 を 140°C 、 T_2 を 100°C に変更した他は実施例1と同様に行って光学用フィルムを製造した。この際、第1冷却ドラムでのシート状熱可塑性樹脂の接触時間 t_1 は 3.1 (秒)、第1冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p1} は 137 ($^{\circ}\text{C}$)、第2冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p2} は 96 ($^{\circ}\text{C}$)、第3冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p3} は 75 ($^{\circ}\text{C}$)、 $t_1 \times (T_{p1} - T_g)$ は -9 (単位: 秒・deg) であった。得られた光学用フィルムの試験結果を表1に記す。

比較例 1

実施例1において、 T_1 を 125°C に変更した他は実施例1と同様に行って光学用フィルムを製造した。この際、第1冷却ドラムでのシート状熱可塑性樹脂の接触時間 t_1 は 3.1 (秒)、第1冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p1} は 123 ($^{\circ}\text{C}$)、第2冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p2} は 117 ($^{\circ}\text{C}$)、第3冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p3} は 79 ($^{\circ}\text{C}$)、 $t_1 \times (T_{p1} - T_g)$ は -53 (単位: 秒・deg) であった。得られた光学用フィルムの試験結果を表1に記す。

比較例 2

実施例1において、 T_1 を 125°C 、 T_2 を 120°C に変更した他は実施例1と同様に行って光学用フィルムを製造した。この際、第1冷却ドラムでのシート状熱可塑性樹脂の接触時間 t_1 は 3.1 (秒)、第1冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p1} は 123 ($^{\circ}\text{C}$)、第2冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p2} は 115 ($^{\circ}\text{C}$)、第3冷却ドラムを離れるときの樹脂温度 T_{p3} は 76 ($^{\circ}\text{C}$)、 $t_1 \times (T_{p1} - T_g)$ は -53 (単位: 秒・deg) であった。得られた光学用フィルムの試験結果を表1に記す。

実施例 5

ミミの幅を左右各 150 mm とする以外は、比較例 2 と同様に行って光学用フィルムを製造した。得られた光学用フィルムの試験結果を表 1 に記す。この例は、比較例 2 の場合に比べて、ミミの幅を変えることにより、本発明の要件を満たす光学用フィルムを得て試験した結果である。

なお、フィルム製造時の各種条件を表 2 にまとめた。

表 1

(表1) 特性値と性能の試験結果

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	比較例 1	比較例 2
特性 値	厚み(μm)	52	47	47	49	44	48	44
	最大Re(nm)	2	2	8	15	4	2	8
	α の範囲(rad)	0.014 ~2.77	0.011~ 2.89	0.008~ 3.11	0.007~ 3.09	0.007~ 3.05	0.035~ 2.81	0.040~ 3.26
	$\sin^2 2\alpha$ の範囲	0.008 ~	0.004 ~	0.003 ~	0.002 ~	0.002 ~	0.005 ~	0.007 ~
	\sin^2 ($\pi \cdot \text{Re}/550$) の範囲 $\times 10^{-5}$	0.998 0~1.3	0.999 0~13.0	0.998 0~208	1.000 13~731	0.998 0~52	0.997 0~13	0.998 0~208
	最大Z値 $\times 10^{-5}$	0.8	3.3	2.3	3.6	3.5	4.5	6.4
	平均の全光線 透過率 (%)	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.04	0.04
性能	色ムラ	◎	○	○	○	○	△	×
	簡易液晶ディス プレイ試験	○	○	○	○	○	△	×
	耐久試験後の 色ムラ	◎	○	○	△	△	×	×

表 2

(表2)各種条件

	T1(°C)	T2(°C)	T1とT2の差	T3(°C)	Tp1(°C)	Tp2(°C)	Tp3(°C)	t1(s)	R1(m/分)	R2(m/分)	R3(m/分)	R3/R2	R2/R1	Tg(°C)	t1 × (Tp1 - Tg)
実施例1	135	125	10	80	132	119	79	3.1	14.50	14.46	14.40	0.996	0.997	140	-25
実施例2	130	125	5	80	128	121	81	3.1	14.50	14.46	14.40	0.996	0.997	140	-37
実施例3	130	120	10	80	128	114	77	3.1	14.50	14.46	14.40	0.996	0.997	140	-37
実施例4	140	100	40	80	137	96	75	3.1	14.50	14.46	14.40	0.996	0.997	140	-9
比較例1	125	125	0	80	123	117	79	3.1	14.50	14.46	14.40	0.996	0.997	140	-53
比較例2	125	120	5	80	123	115	76	3.1	14.50	14.46	14.40	0.996	0.997	140	-53
実施例5	125	120	5	80	123	115	76	3.1	14.50	14.46	14.40	0.996	0.997	140	-53

表 1 が示すように、本発明の実施例の光学用フィルムは、比較例の場合に比べて、Z 値が小さいため、全光線透過率、偏光度、色ムラ、耐久試験後の色ムラとともに優れている。実施例 1 から 3、および 5 の結果は、実施例 4 の結果に比べて、最大 R_e 値が小さいため、色ムラと簡易液晶ディスプレイ試験の結果に優れている。実施例 1 から 3 の結果は、実施例 4 及び 5 の結果に比べて、Z 値が小さいため、耐久試験後の色ムラに優れている。

次いで、得られた光学用フィルムを延伸加工をして位相差フィルムとする場合の性能試験を行った。本発明で得られる光学用フィルムは、その後に延伸加工することによって、位相差フィルムとすることができる。位相差フィルムとしては、所定の位相差（レターデーション値）を持ち、その値が均一であることが要求される。位相差フィルムの原料フィルムとしての、本発明の光学用フィルムの性能を調べるために以下の試験を行った。

実験で得られた光学用フィルムを、（幅 100 mm、長さ 150 mm）で切り出して試験片とし、この試験片を 140℃で縦方向に 1.1～2 倍、100 mm/分の速さで延伸した。延伸倍率は、レターデーションが平均で 275 ± 10 nm となるように調整した。（2）と同様の測定方法によりレターデーションを測定し、バラツキ（最大値と最小値との差）を平均値で割って R_e ムラとした。測定点は幅方向の中心部で、長さ方向の中心付近を 10 mm おきに 10 点とした。

表 3 には、各実験例について、延伸後の R_e ムラを測定した結果を示す。

表 3

(表3) 延伸後のReムラ試験結果

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	比較例1	比較例2
延伸後のReムラ(%)	1.8	2.2	2.1	2.6	2.1	5.8	6.6

表 3 が示すように、本発明の実施例の光学用フィルムは、比較例の場合に比べて、Z 値が小さいため、延伸加工後のリターデーションムラが小さくて優れており、本発明の光学用フィルムが位相差フィルムの原料フィルムとして適している。

産業上の利用可能性

本発明により、光学的歪みの小さい光学用フィルムが提供される。本発明の光学用フィルムは、偏光子の保護フィルムや液晶セル基板用フィルムなどのフラットパネルディスプレイ用の各種の光学用フィルムとして有用である。また、本発明の光学用フィルムは、レターデーションの大きさが小さく均一なものであるが、その後に延伸加工することによって、所定のレターデーションの大きさをもち、その値が均一である位相差フィルムとすることができるから、本発明の光学用フィルムは位相差フィルムなどの原料フィルムとしても有用である。

請求の範囲

1. 溶融押出機を用いて得られた熱可塑性樹脂フィルムで構成してある光学用フィルムであって、

前記熱可塑性樹脂フィルムが、該熱可塑性樹脂フィルムの前記溶融押出機からの押出方向と各点における遅相軸とのなす角度を α とし、各点におけるレターデーションの大きさを R_e としたときに、フィルム全面に亘って、下記式の間係を満足するものであることを特徴とする光学用フィルム。

$$[\sin^2 2\alpha] \times [\sin^2 (\pi \cdot R_e / 550)] \leq 4.0 \times 10^{-5}.$$

2. 前記 R_e の値が10nm以下である請求項1に記載の光学用フィルム。

3. 前記熱可塑性樹脂が脂環式構造含有重合体である請求項1または2に記載の光学用フィルム。

4. 押出機から押出された溶融状態の熱可塑性樹脂を、第1冷却ドラム、第2冷却ドラム及び第3冷却ドラムに、順に、外接させて冷却する工程を有する、熱可塑性樹脂フィルムで構成してある光学用フィルムの製造方法であって、

前記第3冷却ドラムの周速度を R_3 (m/分)とし、前記第2冷却ドラムの周速度を R_2 (m/分)としたときの、該 R_3 と R_2 との比(R_3/R_2)を0.990以上0.999未満として、前記熱可塑性樹脂を冷却する、光学用フィルムの製造方法。

5. 前記第1冷却ドラムでの樹脂接触時間を t_1 (秒)とし、前記熱可塑性樹脂の前記第1冷却ドラムを離れるときの温度を T_{p1} (°C)とし、前記熱可塑性樹脂のガラス転移温度を T_g (°C)としたときの、 $t_1 \times (T_{p1} - T_g)$ (単位: 秒・deg)を、-50以上20以下として、前記熱可塑性樹脂を冷却する、請求項4に記載の光学用フィルムの製造方法。

6. 前記第1冷却ドラムの周速度を R_1 (m/分)としたときの、前記 R_2 と該 R_1 との比(R_2/R_1)を0.990以上1.01未満として、前記熱可塑性樹脂を冷却する、請求項4に記載の光学用フィルムの製造方法。

7. 前記熱可塑性樹脂の前記第3冷却ドラムを離れるときの温度を T_{p3} (°C)としたときの、該 T_{p3} を前記 T_g よりも50~100°C低い温度にして、前記熱可塑性樹脂を冷却する、請求項4に記載の光学用フィルムの製造方法。

8. 前記熱可塑性樹脂の前記第2冷却ドラムを離れるときの温度を T_{p2} (°C)としたときに、該 T_{p2} を前記 T_g よりも0~60°C低い温度にして、前記熱可塑性樹脂を冷却する、請求項4に記載の光学用フィルムの製造方法。

9. 前記第1冷却ドラムと前記第2冷却ドラムの温度差を20°C以下として、前記熱可塑性樹脂を冷却する、請求項4に記載の光学用フィルムの製造方法。

10. 請求項1~3のいずれかに記載の光学用フィルムで構成される偏光子の保護フィルム。

11. 偏光子と、該偏光子の片面または両面に接着層を介して積層された請求項10に記載の保護フィルムとを、有する偏光フィルム。

12. 請求項1~3のいずれかに記載の光学用フィルムを延伸加工して得られる位相差フィルム。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/03506

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ G02B5/30, C08J5/18, B29C47/88

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ G02B5/30, C08J5/18, B29C47/88, B29L7:00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2003

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2001-337221 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 07 December, 2001 (07.12.01), Full text; all drawings (Family: none)	1-12
A	WO 93/02381 A1 (NIPPON ZEON CO., LTD.), 04 February, 1993 (04.02.93), Full text; all drawings & JP 6-51117 A	1-12

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 "E" earlier document but published on or after the international filing date
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
27 May, 2003 (27.05.03)Date of mailing of the international search report
10 June, 2003 (10.06.03)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ G02B5/30, C08J5/18, B29C47/88

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ G02B5/30, C08J5/18, B29C47/88, B29L7:00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2003年
 日本国登録実用新案公報 1994-2003年
 日本国実用新案登録公報 1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P. 2001-337221 A (積水化学工業株式会社) 2001. 12. 07, 全文全図 (ファミリーなし)	1-12
A	WO 93/02381 A1 (NIPPON ZEON CO., LTD.) 1993. 02. 04, 全文全図 & J P 6-51117 A	1-12

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

27. 05. 03

国際調査報告の発送日

10.06.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

山村 浩

2 V

9219

電話番号 03-3581-1101 内線 3271